

**This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- **BLACK BORDERS**
- **TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- **FADED TEXT**
- **ILLEGIBLE TEXT**
- **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- **COLORED PHOTOS**
- **BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS**
- **GRAY SCALE DOCUMENTS**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



PATENTSCHRIFT

1 283 209

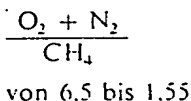
Deutsche Kl.: 12 k - 3/02

Nummer: 1 283 209
 Aktenzeichen: P 12 83 209.6-41 (S 103 0777)
 Anmeldetag: 7. April 1966
 Auslegetag: 21. November 1968
 Ausgabetag: 24. Juli 1969
 Patentschrift stimmt mit der Auslegeschrift überein

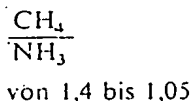
 109/903777
 S. PTO
 07/13/01


1

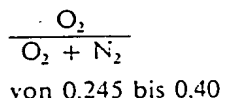
Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Cyanwasserstoff durch Umsetzung von Ammoniak, Methan, Stickstoff und Sauerstoff bei einem Molverhältnis von



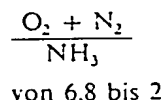
und



in Gegenwart eines aus einem Platinmetall-Netz oder dessen Legierungen bestehenden Katalysators bei 1100 bis 1200°C, das dadurch gekennzeichnet ist, daß man ein gasförmiges Gemisch einsetzt, das mit Sauerstoff angereicherte Luft enthält, wobei die Molverhältnisse



und



betragen.

Die industrielle Synthese von HCN aus Ammoniak, Methan und Luft, bei der die zur endothermen Umsetzung erforderliche Wärme $\text{NH}_3 + \text{CH}_4 \rightarrow \text{HCN} + 3\text{H}_2$ durch zeitweilige Verbrennung von Sauerstoff mit Methan geliefert wird, ist weitgehend bekannt. Im allgemeinen wird das Verfahren in Gegenwart von Katalysatoren bei Temperaturen von 900 bis 1200°C unter Verwendung von großen Mengen Luft durchgeführt. Die die Katalysatorzone verlassenden Gase enthalten nicht nur HCN, sondern auch Kohlenmonoxyd, Wasserstoff, Wasserdampf, Stickstoff und Kohlendioxyd sowie nicht umgesetztes Methan und Ammoniak, so daß die HCN sehr verdünnt ist. Hierdurch entstehen beachtliche technische Schwierigkeiten während der Trennstufen.

Ähnliche Schwierigkeiten treten auf, wenn man nach einigen der bekannten Verfahren mit sehr großen Mengen Methan im Vergleich zur Ammoniakmenge arbeitet.

Verfahren zur Herstellung von Cyanwasserstoff

Patentiert für:

Società Edison, Mailand (Italien)

Vertreter:

Dr. jur. Dipl.-Chem. W. Beil, A. Hoeppener
und Dr. jur. Dipl.-Chem. H. J. Wolff,
Rechtsanwälte, 6230 Frankfurt-Höchst

Als Erfinder benannt:

Francesco Albanese,
Enrico Padula,
Massimo Principi, Venedig (Italien)

Beanspruchte Priorität:

Italien vom 14. April 1965 (8265)

2

Die Umsetzungen und Ausbeuten an HCN, die nach diesen Verfahren erhalten werden, erreichen keine sehr hohen Werte, was, zusammen mit der nachteiligen Verdünnung der erhaltenen HCN, ihre Anwendung nicht sehr vorteilhaft erscheinen läßt.

Nach anderen bekannten Verfahren werden die sich umsetzenden Gase einer Vorwärmung auf hohe Temperaturen unterworfen, so daß man in einigen Fällen in Gegenwart verhältnismäßig geringer Luftmengen arbeiten kann, wodurch höhere HCN-Konzentrationen in den Austrittsgasen erhalten werden. Jedoch bringt die Vorwärmung auf hohe Temperaturen beachtliche Schwierigkeiten mit sich. Die Verwendung von mit hohen Temperaturen arbeitenden Vorwärmern ist ziemlich umständlich, und außerdem ist es erforderlich, das Ammoniak auf Grund seiner niedrigen Zersetzungstemperatur getrennt vorzuwärmen, wodurch das Verfahren noch komplizierter wird.

Es ist beispielsweise aus der USA.-Patentschrift 3 104 945 ein Verfahren bekannt, bei dem ein gasförmiges Gemisch aus Ammoniak, Methan und Luft in Gegenwart eines Platinmetall-Netzes umgesetzt wird, wobei das Verhältnis von Methan zu Ammoniak zwischen 0,8:1 und 1,2:1 liegt und Luft in einer Menge zugeführt wird, daß der O_2 -Gehalt der Gasmischung 25 bis 40% beträgt. Bei diesem Verfahren, bei dem normale Luft als Sauerstoffquelle verwendet wird, ist jedoch ebenfalls eine ver-

909 630 99

 un
der
die
zie
du
sic
!
der
CH
kr.
ner
M.
Ex
fol
-
+
ge
zie
so
he
su
di
ve

Ve

 st
ei
g
E
E
C
d

und 4 dargestellt werden, im Bereich der Ansprüche der vorliegenden Erfindung liegen und auf die sich die nachstehenden Beispiele 2, 3, 4, 5, 6 und 7 beziehen, sind praktisch ähnlich wie die der vorstehend durch Punkt 1 gekennzeichneten Zusammensetzungen sicher gegen Entzündbarkeit.

Insbesondere bei der Verwendung eines Gemisches der Zusammensetzung gemäß Punkt 3 ($\text{NH}_3 = 16,1\%$, $\text{CH}_4 = 21\%$, $\text{O}_2 = 18,8\%$, $\text{N}_2 = 44,1\%$) liegen die kritischen Veränderungen der einzelnen Komponenten, die notwendig sind, um bei Verwendung von Methan, Ammoniak, Luft und reinem Sauerstoff Explosionsbedingungen zu erzielen, etwa bei den folgenden Werten: $+40\%$ für die angereicherte Luft, -41% für Methan, -94% für Ammoniak und $+90\%$ für reinen Sauerstoff.

Es zeigt sich also, daß die durch das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung von HCN erzielten Vorteile, insbesondere die hohen Ausbeuten sowie die hohen HCN-Konzentrationen unter Sicherheitsbedingungen erzielt werden, die nicht geringer sind als diejenigen der bekannten Verfahren, die nicht die gleichen Vorteile aufweisen. Dadurch ist das vorstehend beschriebene Verfahren vom Standpunkt

seiner industriellen Anwendbarkeit außerordentlich wertvoll.

Ferner wird die Sicherheit bei der Herstellung von HCN durch die Tatsache erzielt, daß das Verfahren vorzugsweise mit linearen Gasgeschwindigkeiten über den Katalysatornetzen durchgeführt wird, die gleich 2,5 m/Sek. oder höher sind. Sie ist daher sehr viel höher als die Flammausbreitungsgeschwindigkeit der in Frage kommenden gasförmigen Gemische.

Die folgenden Beispiele dienen der besseren Erläuterung der vorliegenden Erfindung.

Sieben gasförmige Gemische, die NH_3 , CH_4 , Luft und O_2 enthielten, wurden zu HCN in Gegenwart von acht Netzen umgesetzt, die aus 90 Gewichtsprozent Platin und 10 Gewichtsprozent Rhodium bestanden, und deren Webart einer Siebgröße von 177μ und einer Fadenstärke von $0,0762\text{ mm}$ entsprach.

Die Beschickungstemperatur der Gase, die in den Reaktor geführt wurden, lag bei 110°C und die des Katalysators bei 1120 bis 1150°C . Die lineare Gasgeschwindigkeit an den Netzen betrug 2,7 m/Sek.

Es wurden die folgenden Ergebnisse erhalten:

Versuch	Prozentsatz der Gase in dem Beschickungsgemisch, Volumprozent				Volumenverhältnis der Gasströme				HCN-Gewichtskonzentration in den aus dem Reaktor austretenden Gasen, Gewichtsprozent	Umsetzung von NH_3 zu HCN, %	Ausbeute, berechnet auf umgewandeltes NH_3 , %
	N_2	NH_3	CH_4	O_2	$\frac{\text{O}_2}{\text{O}_2 + \text{N}_2}$	$\frac{\text{N}_2 + \text{O}_2}{\text{NH}_3}$	$\frac{\text{N}_2 + \text{O}_2}{\text{CH}_4}$	$\frac{\text{CH}_4}{\text{NH}_3}$			
1	59,5	10,7	14	15,8	0,21	7	5,4	1,3	7,5	68	80
2	54,0	12,4	16,0	17,6	0,245	5,78	4,47	1,3	9,2	70	82
3	44,1	16,1	21	18,8	0,30	3,9	3	1,3	12,6	70	82
4	44,6	16,2	20,2	19	0,30	3,9	3,15	1,25	13,0	72	85
5	45,0	16,3	19,5	19,2	0,30	3,9	3,25	1,2	13,8	76	91
6	45,6	16,3	18,7	19,5	0,30	4,0	3,5	1,15	13,5	75	92
7	29,4	22,0	29,0	19,6	0,40	2,23	1,69	1,32	17,1	65	75

Wie ersichtlich ist, führen die Versuche der Beispiele 2, 3, 4, 5, 6 und 7, deren Zusammensetzungen einen Teil der vorliegenden Erfindung bilden, zu größeren Umsetzungen und Ausbeuten sowie größeren HCN-Konzentrationen, als bei dem Versuch des Beispiels 1 erzielt werden, wo das Verfahren mit Gemischen herkömmlicher Zusammensetzungen durchgeführt wird.

Patentansprüche:

1. Verfahren zur Herstellung von Cyanwasserstoff durch Umsetzung von Ammoniak, Methan, Stickstoff und Sauerstoff bei einem Molverhältnis von

$$\frac{\text{O}_2 + \text{N}_2}{\text{CH}_4}$$

von 6,5 bis 1,55

und

$$\frac{\text{CH}_4}{\text{NH}_3}$$

von 1,4 bis 1,05

an einem aus einem Platinmetall-Netz oder dessen Legierungen bestehenden Katalysators bei Temperaturen von 1100 bis 1200°C , dadurch gekennzeichnet, daß man ein gasförmiges Gemisch einsetzt, das mit Sauerstoff angereicherte Luft enthält, wobei die Molverhältnisse

$$\frac{\text{O}_2}{\text{O}_2 + \text{N}_2}$$

von 0,245 bis 0,40

und

$$\frac{\text{O}_2 + \text{N}_2}{\text{NH}_3}$$

von 6,8 bis 2

betragen.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein Gasgemisch eingesetzt wird, dessen Zusammensetzung den in den nachfolgend

7
angegebenen Bereichen liegenden Molverhältnissen entspricht:

$$\frac{\text{O}_2}{\text{O}_2 + \text{N}_2}$$

von 0,270 bis 0,317,

$$\frac{\text{O}_2 + \text{N}_2}{\text{NH}_3}$$

von 4,8 bis 3,65,

$$\frac{\text{O}_2 + \text{N}_2}{\text{CH}_4}$$

von 4,55 bis 2,80.

$$\frac{\text{CH}_4}{\text{NH}_3}$$

von 1,3 bis 1,1.

10 In Betracht gezogene Druckschriften:
Deutsche Auslegeschrift Nr. 1 005 049;
USA.-Patentschrift Nr. 3 104 945.

Hierzu 1 Blatt Zeichnungen

